

# IRIDにおける福島第一原子力発電所廃炉 に関する技術開発状況

## (3) デブリ性状把握に係る技術開発

2014年9月10日

**鷺谷 忠博**

日本原子力研究開発機構 (JAEA)

国際廃炉研究開発機構 (IRID)

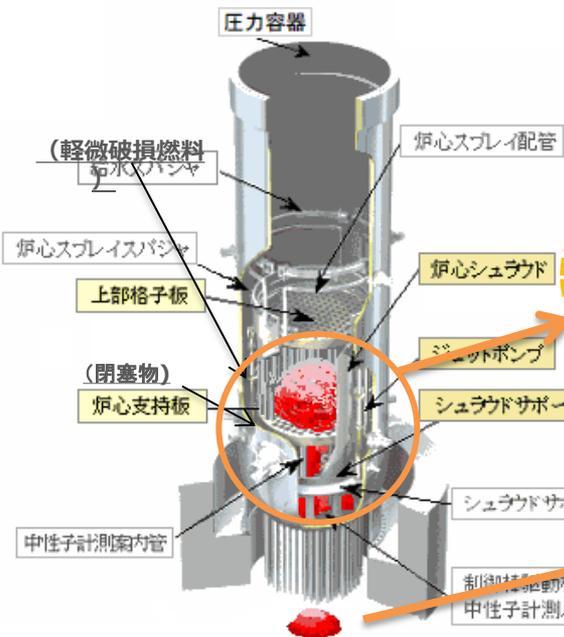
# プロジェクトの概要

燃料デブリの特性把握  
・処置技術開発

反映

反映

反映



1F炉心状況の推定図



(燃料デブリ)



(MCCI生成物)

処置技術検討  
(保管・処分・処理)

計量管理  
の検討

保管方法・  
容器等の検討

取出し工法・  
工具等の検討

デブリの処置

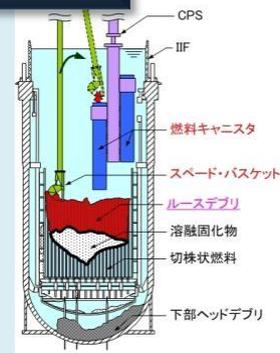
一時保管

デブリ取出し

臨界安全  
管理



(取出し治具例)

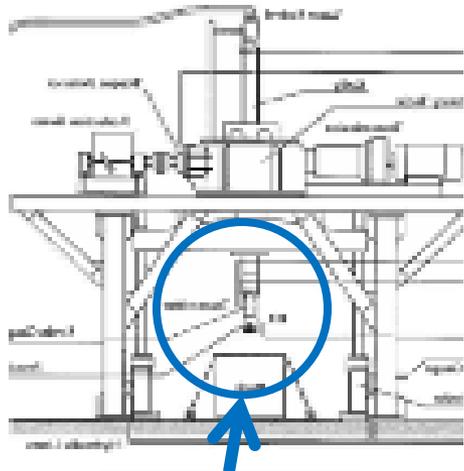


(TMI-2 燃料取出し例)

# 燃料デブリ性状把握の目的

## デブリ取出し装置開発

(デブリ取出しPJ)



コールド試験体

掘削要素試験  
(イメージ)

・切削性・穿孔性などの装置特性  
・工学規模溶融体特性、等

デブリ取出し  
PJ



コールド模擬試験体の  
検討

デブリ  
物性情報

他のPJへも反映

収納保管  
PJ

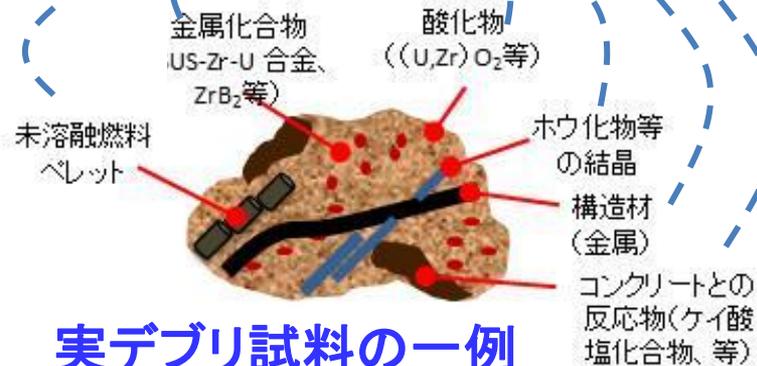
臨界管理  
PJ

計量管理  
PJ

## 模擬デブリによる特性把握

- ・機械特性: 硬度、弾性率、破壊靱性、等
- ・熱的特性: 融点、熱伝導率、比熱、等
- ・その他: 粒径、形状、空隙率、密度、化学形、等

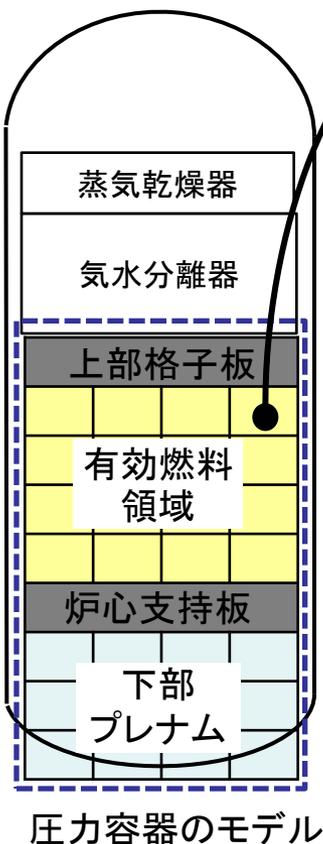
各部位の“物性情報”を取得



実デブリ試料の一例  
(イメージ)

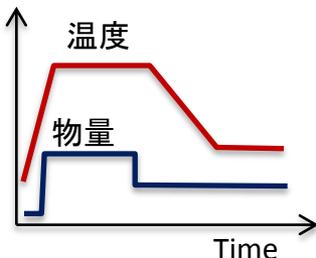
# 1F炉内デブリ性状の推定 (解析の流れ)

事故進展解析Pjからの情報



## SA解析

各セルの温度、物量の推移



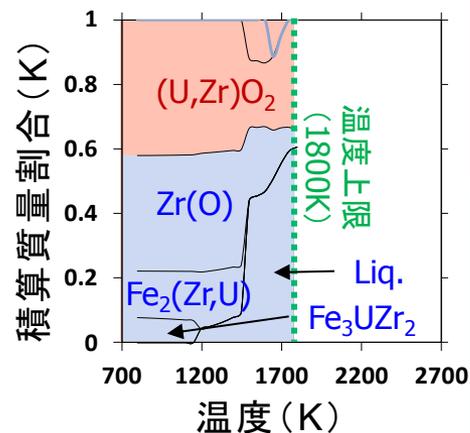
- 材料質量
  - 元素組成
  - 材料の酸化量
  - 最高到達温度
- etc...

## 熱力学平衡計算

- 平衡到達の仮定 (物質移動の収束)
- 熱力学計算条件の設定
  - 材料組成
  - 温度

各セルの状況を推定

## 各相の生成量評価



**酸化物相**  
(U,Zr)O<sub>2</sub>,  
UO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub>

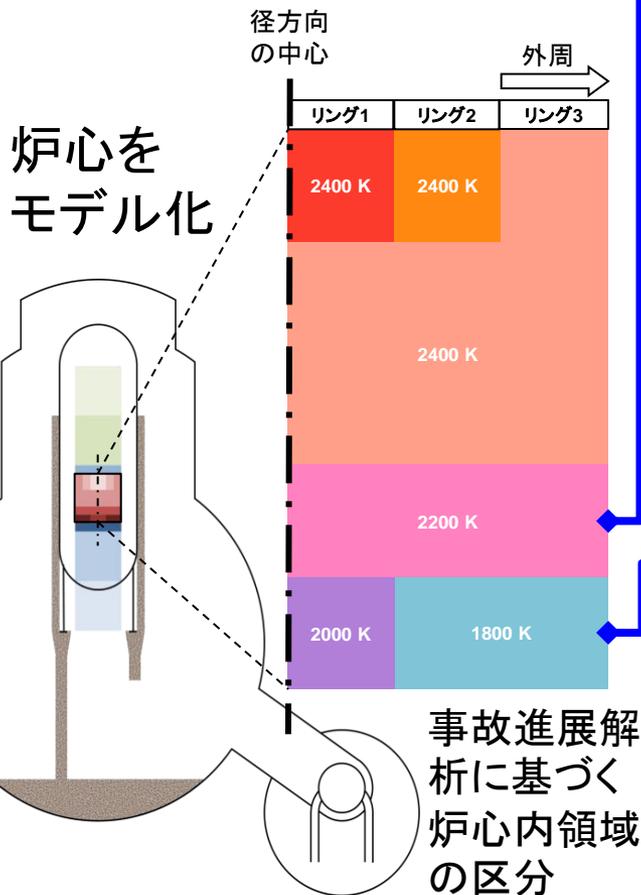
**金属相**  
Zr(O),  
Fe<sub>2</sub>(Zr,U),  
Fe<sub>a</sub>Zr<sub>b</sub>U<sub>c</sub>

図 熱力学平衡計算結果の一例  
U-Zr-O-Fe系、FactSage + NUCLEA

事故解析の不確実性(モデルの不完全さ、解析上の仮定の置き方等)を考慮し、炉心損傷状況が異なる複数のケースを想定。

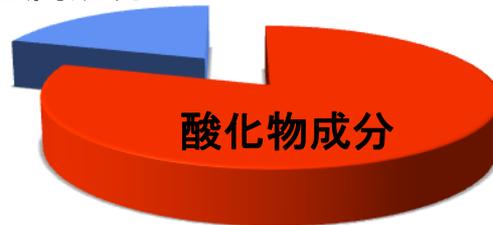
# 1F炉内デブリ性状の推定（熱力学平衡計算）

## 評価結果



### 燃料棒領域（U-Zr-O系）

金属成分



主要な酸化物

$(U,Zr)O_2$   
 $(Zr,U)O_2$

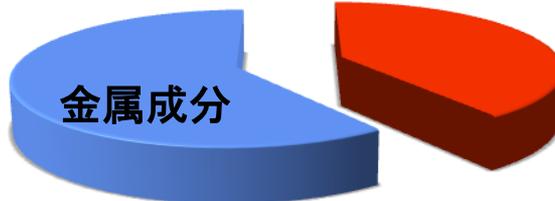
主要な金属

Zr(O)

- ▶ 低融点の構造材(ステンレス等)は溶融して下方に流下。
- ▶ 下部支持板付近で金属デブリを形成

### 下部支持板付近（U-Zr-O-Fe系）

酸化物成分



主要な酸化物

$(U,Zr)O_2$   
 $(Zr,U)O_2$

主要な金属

Zr(O)  
 $Fe_2(Zr,U)$

解析結果に基づき、温度・質量分布等を評価。

⇒ 炉心をモデル化（特徴による区分）

温度・質量分布を元に、想定される炉内の状況下で最も安定的に存在できる物質(化学形)を熱力学平衡計算で評価

# U模擬デブリの調製・性状把握

## ルーズデブリ層



燃料片や溶融燃料が急冷され、粒子化

- ・ $UO_2$
- ・ $(U,Zr)O_2$  等

## ● 模擬デブリ調製の考え方

- ・ 溶融時の温度や酸素分圧の範囲を考慮。量的に多い酸化物系に着目。

## 溶融・固化した炉心

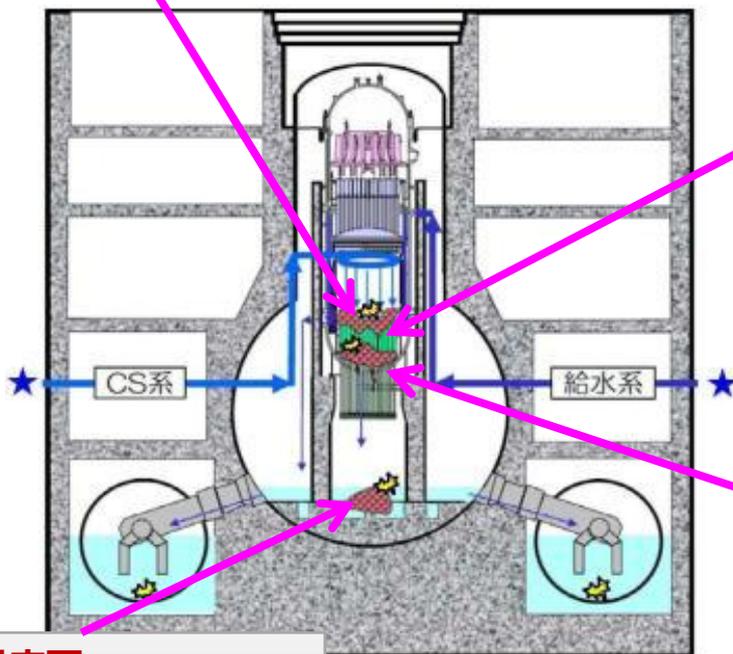


上部/下部クラスト：  
溶融燃料が比較的早く冷却されてできる塊



再溶融固化層：  
溶融燃料がゆっくり冷却されてできる塊

- ・ $(U,Zr)O_2$  (Uリッチ相/Zrリッチ相)
- ・SUS-Zry合金
- ・Zr/Feホウ化物 等



## 下部プレナム/制御棒ハウジング



制御棒案内管に溶融燃料等が付着

- ・SUS
- ・ $(U,Zr)O_2$  等

## 格納容器床面



MCCI生成物  
・ $(U,Zr)O_2$   
・ジルコン 等

溶融進展後に予想される燃料デブリの生成箇所および材料の種類

注) 図や写真は、TMI-2やSA研究の写真及び東京電力による推定状況を暫定的に利用したものであり

、実際の1F状況とは異なる可能性があります。

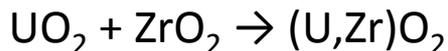
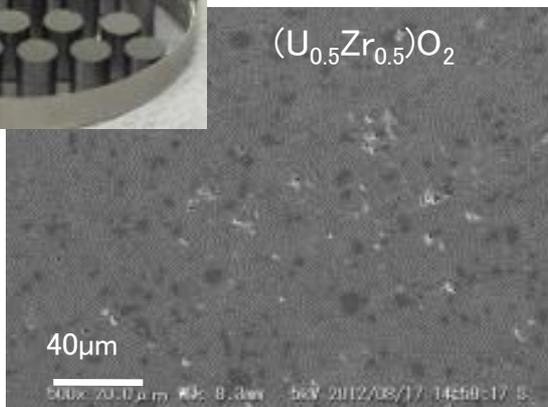
## ● 模擬デブリの調製

- 焼結法やアーク溶解法により (U,Zr)O<sub>2</sub>等の模擬デブリを調製、性状を評価

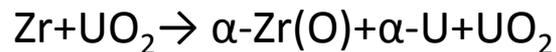
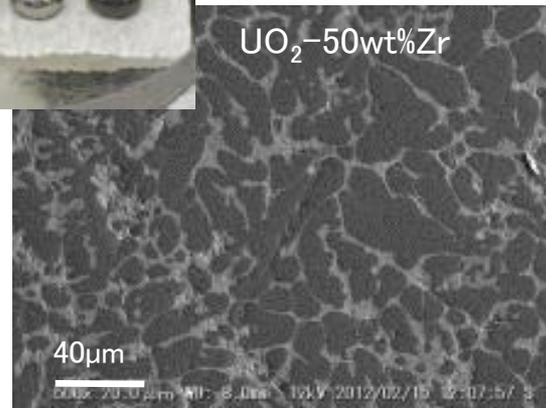
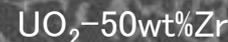
混合組成	焼結密度 (g/cm <sup>3</sup> )	相対密度 (%TD)	相	U/(U+Zr)割合
(U <sub>0.5</sub> Zr <sub>0.5</sub> )O <sub>2</sub>	8.52	~97	立方晶+正方晶+単斜晶	0.5~0.6, 0.1~0.15
(U <sub>0.4</sub> Zr <sub>0.6</sub> )O <sub>2</sub>	7.94	~96	立方晶(準安定相?)	0.15, 0.3, 0.5
(U <sub>0.15</sub> Zr <sub>0.85</sub> )O <sub>2</sub>	6.48	~94	正方晶+単斜晶	0.12~0.18, 0.3



### 焼結法



### アーク溶解法



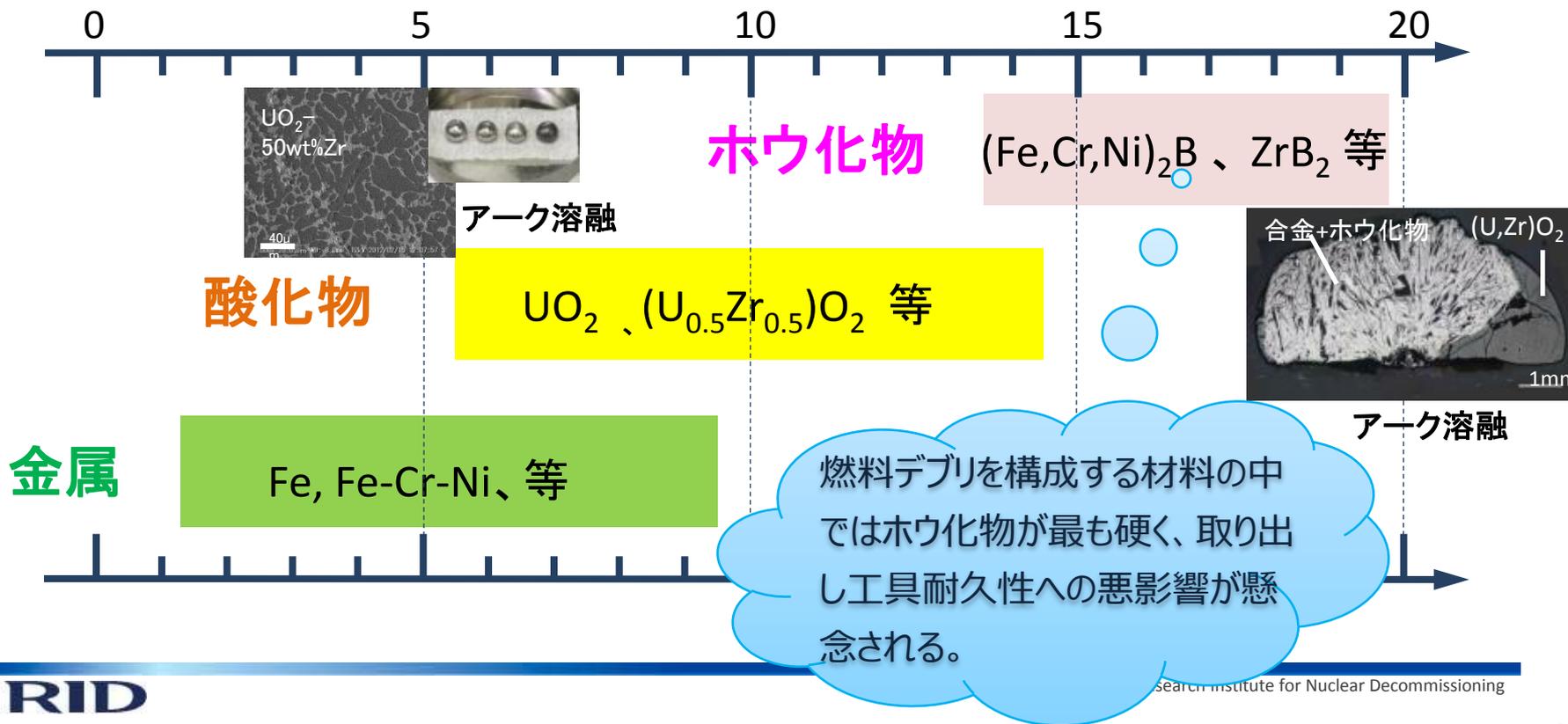
- アーク溶解法、及び焼結法による緻密な(U,Zr)O<sub>2</sub>模擬デブリを調製。
- U/Zr比、酸素分圧等による模擬デブリの相、組織、分布状態等のデータを蓄積

# 模擬デブリによる機械的特性等の測定

ウランやジルコニウムを用いて模擬デブリを作成、種々の組成等のパラメータを振りながら、考えられる燃料デブリの物性データを取得。

例：溶融・固化試料中の各相の微小硬さの測定概略値

## ビッカース硬さ(GPa)

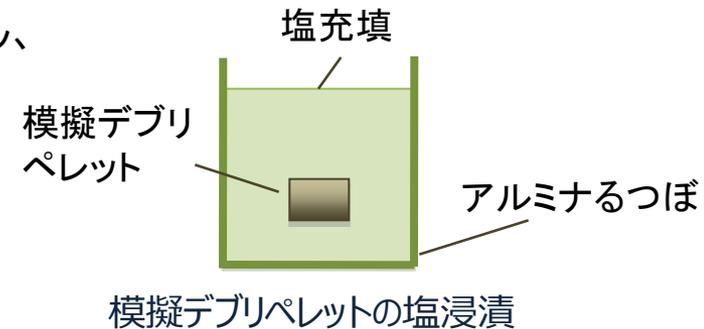


# 1F燃料デブリ特有現象の検討(1/2)

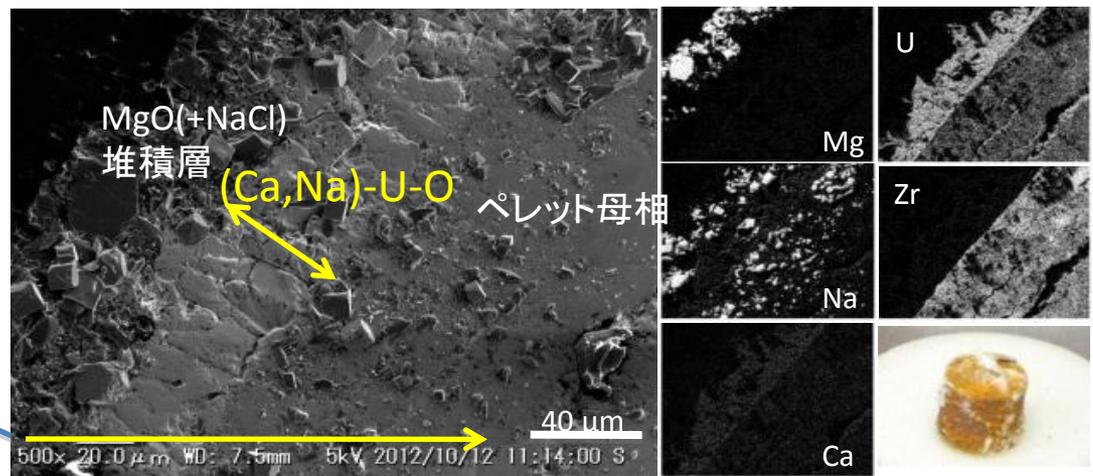
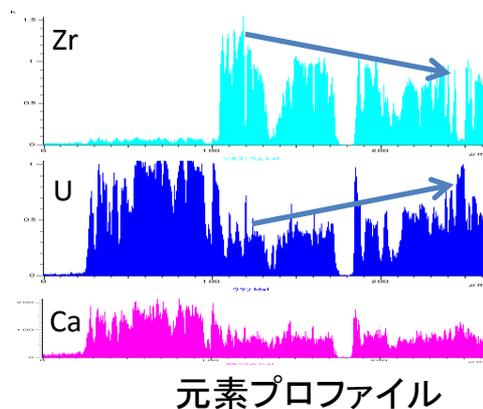
## ● 模擬デブリと海水塩の高温反応

デブリ表面で海水が蒸発して塩が析出した状況を想定した基礎データを取得。

- 蒸固した海水塩に $(U,Zr)O_2$  模擬デブリペレットを浸漬し、 $815 - 1395^\circ\text{C}$ で保持
- 表面にCa(+Na)の緻密なウラン酸塩層が生成  
 $\text{Ca/Na/U} \rightarrow (\text{Ca,Na})\text{UO}_{4-x}$  or  $\text{CaNaU}_2\text{O}_{7-x}$
- Uが選択的に反応し、ペレット表層近傍では濃度勾配



例 :  $(U_{0.4},Zr_{0.6})O_2$  - 海水塩



$(U_{0.4},Zr_{0.6})O_2$  模擬デブリペレット断面のSEM像及びX線像 (空气中、 $1002^\circ\text{C}$ 、12h)

# 1F燃料デブリ特有現象の検討(2/2)

## ● 模擬デブリと制御材 (B<sub>4</sub>C) の高温反応

燃料集合体と制御棒 (B<sub>4</sub>C) から成るデブリについて、酸化物相、合金相、及びホウ素のデータを取得。

- B<sub>4</sub>Cと燃料集合体の原料粉末をアーク溶融
- 生成物は Fe-Cr-Ni-Zr合金(Fe<sub>2</sub>Zr型)、ZrC、(Fe,Cr)<sub>2</sub>B、ZrB<sub>2</sub>



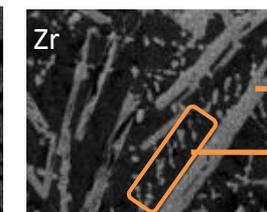
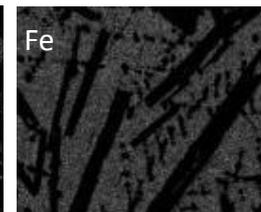
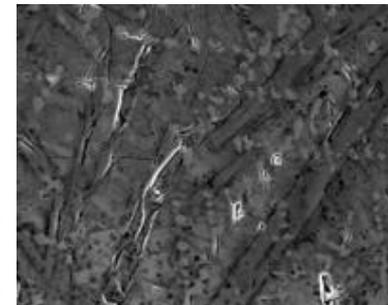
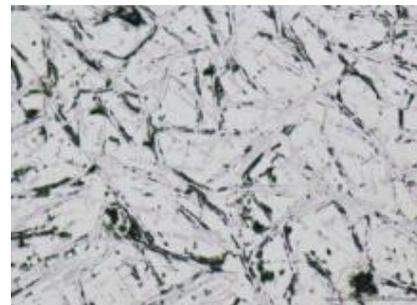
混合物成形体



溶融固化物

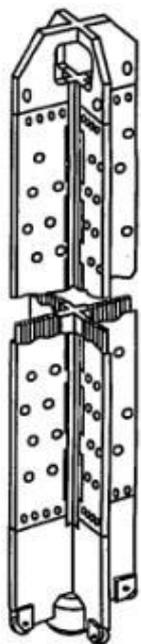
アーク溶解前後の外観

例：B<sub>4</sub>C/SUS/Zr (5/45/50 wt%)の反応生成物

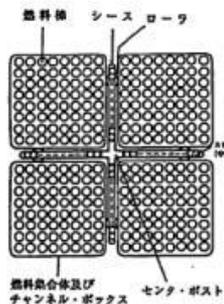


ZrB<sub>2</sub>  
ZrC

光学顕微鏡、SEM像及びX線像



制御棒

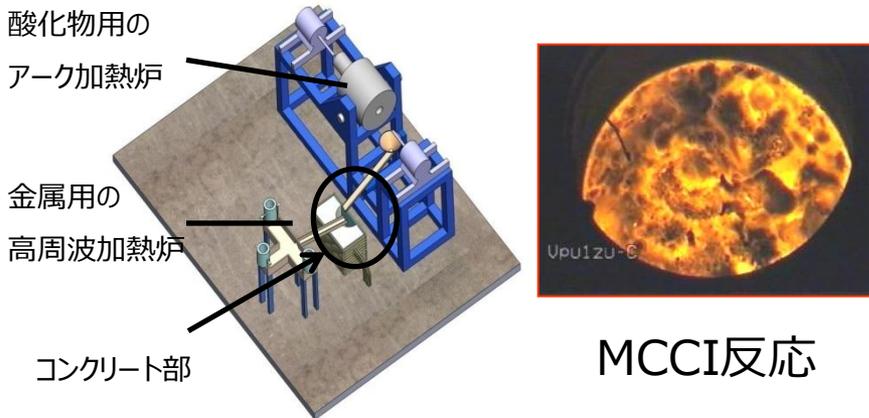


制御棒と燃料集合体

- Fe-Zr, Ni-Zr共晶  
~940、1200、1300℃
- Fe-B<sub>4</sub>C共晶~1150℃
- SUS融点~1400℃
- ZrによるUO<sub>2</sub>溶解~1760℃

# 国際協力を用いたMCCI生成物の特性把握

## 仏) CEAのVULCANO試験装置



### 1FのMCCI条件 (推定)

- **コリウム組成**  
 ⇒ Zryが全量酸化したとして  
 $ZrO_2/UO_2 \approx 0.55$ 程度  
 コリウムの冷却条件等によりこの前後に幅広く分布
- **コンクリート組成**  
 ⇒ SiO<sub>2</sub>はおよそ60%  
 骨材、セメントの混合比などによって前後する

表 炉内燃料、構造物の重量

	1号機
炉内構造物	18 t
UO <sub>2</sub>	79 t
Zry	32 t

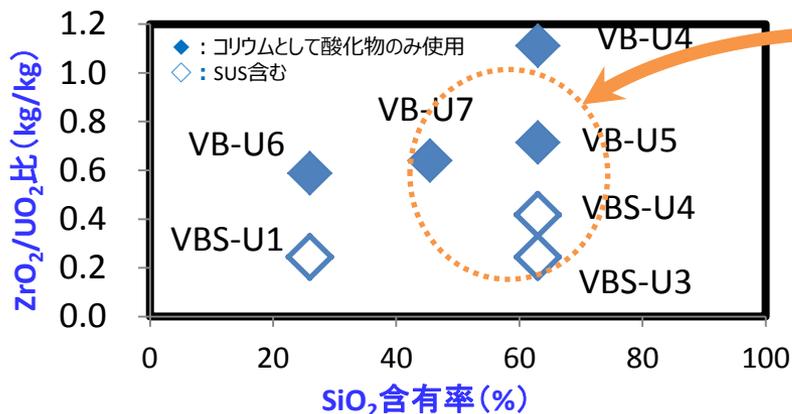
(東京電力のMAAP入力条件より抜粋)

表 玄武岩系コンクリートの分解生成物の割合

成分	割合(%)
CaO	9.51
MgO	6.7
SiO <sub>2</sub>	59.16
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	8.97
H <sub>2</sub> O	4.9
CO <sub>2</sub>	1.5

(JNESのCOCOベンチマーク条件より抜粋)

## ● CEAのMCCI試験と1F条件の比較



CEAのMCCI試験施設及び、CEAで保有しているMCCI試験サンプルを利用し、MCCI生成物の基本的な特性を早期に把握。

# TMI-2デブリとの比較

## ● TMI-2デブリを用いた特性データの取得

### ➤ 基礎物性、機械的特性データ

SEM-EPMA、XRD、密度等の基礎物性に加え、ビッカース硬度等を取得する。

### ➤ 化学特性データ

アルカリ融解等による分析技術の検証を行う。また、元素分析、浸漬データを取得する。



TMI-2デブリサンプル

### 基礎物性・機械特性

H26～実施

形状観察

密度測定

硬さ測定

SEM-EPMA

XRD

### 化学特性

H26～実施

アルカリ溶融

元素分析

硝酸溶解

浸漬試験

その他

# デブリ物性リストの作成

基本

	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	気孔率 (-)	ビッカース 硬度 (GPa)	ヤング率 (GPa)	破壊靱 性 (MPa m <sup>1/2</sup> )	熱伝導 率 (W/mK)	比熱 (J/Kmol)	融点 (°C)
<b>圧力容器内</b>								
<b>酸化物</b>								
a. UO <sub>2</sub>								
b. ZrO <sub>2</sub>								
c. (U,Zr,M)O <sub>2</sub> (立方晶)		?	4-6	190-220	1.1	10	70-90	2865
d. (U,Zr)O <sub>2</sub> (正方晶)		?	9-12	160-220	3-8	1-3	50-60	2715
e. (U,Zr)O <sub>2</sub> (単斜晶)		?	6-14	160-210	1-3	1-4	Update	2500-2900
		?	Update	Update	Update	Update	Update	Update
		?	Update	Update	Update	Update	Update	Update
<b>金属</b>								
f. Zircalloy-2		?	9	88	Update	23	25	1855
g. SUS		?	Update	Update	Update	Update	Update	Update
h. α-Zr(O)		?	Update	Update	Update	Update	Update	Update
i. Fe <sub>2</sub> (Zr,U)		?	Update	Update	Update	Update	Update	Update
j. Fe <sub>3</sub> UZr <sub>2</sub>		?	Update	Update	Update	Update	Update	Update
<b>その他セラミック</b>								
k. ZrB <sub>2</sub>		?	17-20	Update	Update	Update	Update	Update
<b>ペDESTAL部(圧力容器外)</b>								
		?	Update	Update	Update	Update	Update	Update

文献情報でカバー

平成25年度まで  
・(U,Zr)O<sub>2</sub>系：  
焼結体の物性を取得

平成26年度以降  
・(U,Zr)O<sub>2</sub>系：  
結晶構造での比較や  
、熔融体の物性取得  
(焼結体との比較)  
に着手。

文献情報でカバー

平成26年度以降  
・金属系：  
物性取得に着手。

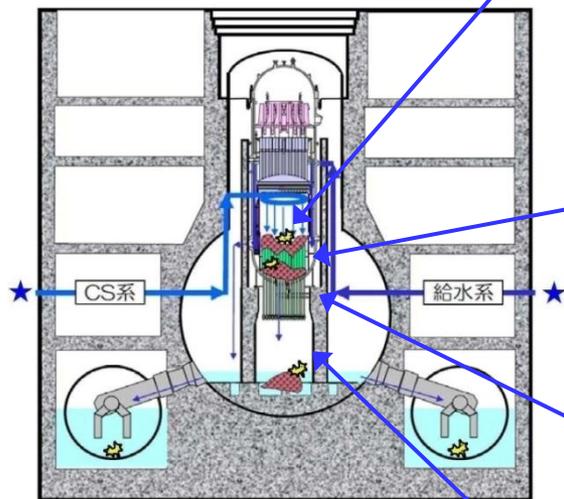
平成26年度以降  
・MCCI生成物：  
化学形の絞込み及び  
物性取得に着手。

3までに調査・取得したデータに基づき作成されています。

# 1F炉内のデブリ状況の推定へ反映

各種情報をもとに炉内のデブリ位置や性状等を推定する。

- 炉内解析結果を反映。
- 1F状況の情報を反映。
- TMI-2、SA研究の知見を反映



## 2号機における燃料破損燃料の推定状態※

※ 炉心状態の推定図原画は、「東京電力株式会社 福島第一原子力発電所1～3号機の炉心・格納容器の状態の推定と未解明問題に関する検討 第1回進捗報告 平成25年12月13日」報告書から引用。

### 〔イメージ〕



#### ルースデブリ

【性状】 .....

【主材質】 .....



#### 上部クラスト

【性状】 .....

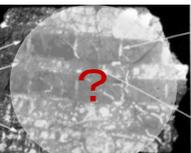
【主材質】 .....



#### 熔融固化物

【性状】 .....

【主材質】 .....



#### クラスト

【性状】 .....

【主材質】 .....

.....



#### MCCI生成物

【性状】 .....

【主材質】 .....

### 〔特徴〕

**デブリ特性リスト  
情報を炉内状況  
の推定へ反映。**

○性状

○主材質

など

## まとめ

### ■ 炉内デブリ状況の推定

- 圧力容器下部では、 $Zr(O)$ や $Fe_2(Zr,U)$ などの金属成分が多く生成している可能性がある。

### ■ 模擬デブリによる特性把握

- デブリ取出しに必要な物性値として、密度、機械物性（硬さ、弾性率、破壊じん性）、熱物性（熱伝導度、比熱、融点）を選定。
- 海水塩、 $B_4C$ 制御材、Pu等の影響を評価。
- TMI-2デブリの特性データを取得中、模擬デブリのデータ等と比較評価。
- MCCI生成物に対する特性把握を加速。（国際協力を利用）

### ■ デブリ特性データの整理

- デブリ特性データを整理し、1 F炉内のデブリ性状の推定、デブリ取出しPj等へ反映。

# 補足資料

# 金属セラミックス溶融固化体製作及び特性評価

- 取出し機器に対して加工が困難と想定される金属／セラミックス不均一溶融固化体を製作し、機器開発用モックアップ体製作のための材料特性を試験評価し、モックアップ体製作方法を策定する。

## 実施方法

### (1) 金属/セラミックス溶融固化体製作試験

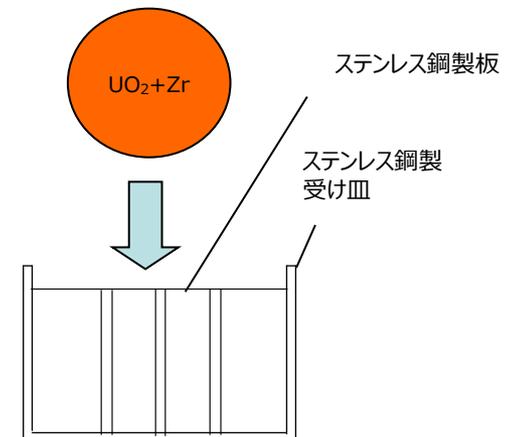
溶解した $UO_2 + Zr$ 混合物（60kg）をステンレス鋼製構造材に落下。  
金属とセラミックスが不均一に急冷固化した溶融固化体を製作。

### (2) 材料評価

金属とセラミックスの境界部およびその周辺に着目し、断面マクロ・ミクロ観察、化学成分分析、硬さ、破壊靱性測定を実施。

### (3) 金属/セラミックス溶融固化モックアップ体設計

機器開発用モックアップ体の材料選定、設計を行い製作仕様を策定。  
現有知見に基づく1Fデブリ性状の推定結果から製作条件を設定。



試験体系